

5. RESULTADOS Y DISCUSION.

5.1. Optimización de mínimos de Lennard-Jones con el potencial de Morse.

Se ha mencionado anteriormente que Saunders y Jiménez-Vázquez han llevado a cabo una búsqueda exhaustiva de mínimos de agregados de argón de 6 a 15 átomos, utilizando el potencial de Lennard-Jones (LJ) acoplado al método de búsqueda estocástica [50]. En este trabajo se localizó un número de mínimos mayor al determinado por otros métodos [40, 47], como se presenta en la Tabla 5.1.1.

Tabla 5.1.1. Comparación del número de mínimos obtenidos para agregados de argón, utilizando diferentes métodos y el potencial de Lennard-Jones.

Agregado	Ar ₆	Ar ₇	Ar ₈	Ar ₉	Ar ₁₀	Ar ₁₁	Ar ₁₂	Ar ₁₃
Número de agregados encontrados								
Hoare		4	8	15	57	145	366	988
Tsai & Jordan		4	8	21	64	152	464	1328
Saunders & Jiménez-Vázquez	2	4	9	23	76	189	510	1498

Al contarse con los archivos conteniendo las estructuras obtenidas por Saunders y Jiménez-Vázquez, se decidió iniciar el estudio con el potencial de Morse optimizando las estructuras de Lennard-Jones ya obtenidas, con el objetivo de analizar las posibles diferencias entre las SEP de Morse y Lennard-Jones, a diferentes valores del intervalo de interacción.

En un primer proceso, se llevó a cabo la optimización de las estructuras de Lennard-Jones para agregados de 6 hasta 13 miembros, utilizando para cada uno de ellos valores de ρ_0 de 2 a 9. Antes de llevar a cabo la optimización con el potencial de Morse, las estructuras de Lennard-Jones tuvieron que ser modificadas ligeramente. Esto se debió a que la búsqueda estocástica se llevó a cabo con el potencial de Lennard-Jones en su forma no reducida. Debido a esto, las estructuras se transformaron en un principio a la forma reducida del potencial de Lennard-Jones. Es conveniente recordar que en la forma reducida del potencial LJ, existe únicamente un juego de estructuras para cada tamaño de agregado, para cualquier tipo de

átomo. Esto se debe a que en esta forma, el potencial LJ no tiene ningún parámetro que se pueda variar.

La conversión de los mínimos de LJ a su forma reducida involucró la modificación de las distancias interatómicas y de las energías correspondientes. Para convertir las estructuras de Lennard-Jones a la forma reducida del potencial, se llevaron a cabo los siguientes puntos:

1. Se escribió un programa —nombrado `ajusta8.e`— que en primer lugar lleva a cabo una operación de traslación de los miembros del agregado, para situar el origen del sistema de coordenadas en el centro de masa del mismo.
2. A continuación se lleva a cabo una “contracción” del agregado, multiplicando las distancias, del centro de masa a cada uno de los átomos, por un factor que permite expresar finalmente las distancias en función de unidades reducidas —es decir, a múltiplos de la distancia de equilibrio—.
3. Se llevó a cabo una reoptimización de todas las estructuras, utilizando el potencial reducido de Lennard-Jones con dos objetivos en mente, (a) determinar las energías en unidades reducidas y (b) asegurarse que en el proceso de conversión permanecieran el menor número de errores posibles. Esto se llevó a cabo utilizando el programa `opt8.e` que es análogo al programa `opt8i.e`, la única diferencia está en el potencial utilizado.

Los archivos conteniendo ahora los mínimos de LJ en el sistema reducido —pertenecientes a los agregados desde 6 a 13 miembros—, fueron entonces optimizados completamente con el programa `opt8i.e`. Al término de cada optimización se llevó a cabo el ordenamiento de las estructuras obtenidas por el valor de energía, y la correspondiente eliminación de duplicados. Cada uno de los agregados se optimizó completamente para valores de ρ_0 de 2 a 9 —es decir, ocho optimizaciones para cada agregado—.

Las estructuras resultantes, para cada valor del intervalo de interacción, se almacenaron en archivos diferentes. Se pudo observar que a medida que el valor de ρ_0 se utilizaba en valores más pequeños, el número de mínimos resultantes disminuía. El número total de mínimos obtenidos en función del intervalo de interacción se presenta en la Tabla 5.1.2.

Como puede observarse en la tabla anterior, la cantidad de mínimos observados después de la optimización se reduce al disminuir el valor de ρ_0 , y sólo para los sistemas más

pequeños se conserva el mismo número de mínimos obtenidos con el potencial de Lennard-Jones.

Tabla 5.1.2. Comparación del número de mínimos en estructuras LJ de agregados desde 6 hasta 13 átomos de argón, antes y después de optimizarlos con el potencial de Morse a diferentes valores del intervalo de interacción.

No. átomos	LJ	Valor del intervalo de interacción							
		2	3	4	5	6	7	8	9
6	2	1	1	1	2	2	2	2	2
7	4	2	2	4	4	4	4	4	4
8	8	1	3	5	8	8	8	8	8
9	21	2	6	11	17	18	21	21	21
10	64	3	12	24	47	59	64	64	64
11	167	1	9	51	118	162	167	166	162
12	510	1	8	77	293	465	509	505	491
13	1498	1	9	155	730	1306	1487	1480	1465

Esto es una evidencia preliminar de la dependencia de la cantidad de mínimos obtenidos con respecto al valor del intervalo de interacción.

Los resultados obtenidos hasta este momento implican que las SEP para los potenciales de Morse y LJ son diferentes, sobre todo a valores pequeños de ρ_0 . Se mencionó también anteriormente, que a un valor de $\rho_0 = 6$ las curvas que describen a los potenciales de Morse y LJ para el caso de dos átomos, son muy parecidas. Sin embargo, puede observarse en la Tabla 5.1.2 que aún a este valor del intervalo de interacción, los mínimos de LJ no necesariamente corresponden a mínimos en la SEP determinada por el potencial de Morse.

Berry ha indicado que los valores de ρ_0 correspondientes a sistemas atómicos reales, se encuentran normalmente en el intervalo $1.5 < \rho_0 < 7$ [45]. Sin embargo, la extensión de este estudio a un intervalo mayor de valores de ρ_0 sería útil para tener un conocimiento más completo de la influencia del intervalo de interacción sobre las SEP de sistemas análogos.

Desde el punto de vista energético, los mínimos más estables para un mismo agregado, correspondieron a los valores más pequeños del intervalo de interacción. Al igual que sucede con el potencial de LJ, la estabilidad de agregado se ve afectaba favorablemente al incrementar el número de átomos que lo constituyen, lo cual puede deberse al mayor número de interacciones atractivas presentes en el sistema.

5.2. Segundo proceso: Reoptimización de las estructuras LJ.

Entre los objetivos perseguidos al llevar a cabo este segundo proceso, están el corroborar los resultados del proceso anterior, así como analizar el efecto del potencial de Morse sobre el agregado de 14 miembros.

También se decidió extender el estudio del valor de ρ_0 desde 1 hasta 10 —con esta extensión, se trabajó sobre un total de 90 archivos—. Adicionalmente, entre estos objetivos se incluía la detección de las estructuras “sobrevivientes” del proceso de reoptimización en relación a la geometría del agregado original. Las estructuras iniciales a utilizar fueron las descritas anteriormente es decir, los mínimos en las SEP de LJ. El procedimiento seguido en esta ocasión para reoptimizar las estructuras de LJ fue similar al anterior; sin embargo, se hicieron algunas modificaciones, las cuales se describen en las siguientes líneas.

Se decidió finalmente llevar a cabo la optimización manual y completa de las estructuras de LJ, sin llevar a cabo una eliminación de duplicados. De esta forma, el objetivo en mente era el tener la posibilidad de diferenciar en un momento dado las estructuras de LJ que después de la optimización dejan de ser mínimos, de aquellas estructuras que posteriormente continuaban aún siéndolo. Al final de la optimización de cada uno de los sistemas se utilizó el programa `sorm8.f`, que como se mencionó en un apartado anterior, ordena las geometrías en orden ascendente de energía.

Con respecto a este programa, cabe hacer el comentario de que al ejecutarse, se crea un archivo —nombrado `sorts.lis`— que contiene la posición de la estructura en el archivo original —referida como `OSP`—, la posición de la misma en el archivo que contiene a las estructuras una vez ordenadas —referida como `FSP`—, y la energía correspondiente a esa estructura. En este archivo las estructuras duplicadas tendrán energías iguales, no así sus `OSP` y `FSP`.

Una vez optimizadas y ordenadas todas las estructuras de un archivo correspondiente a un agregado, para un valor de ρ_0 particular, se procedió a la eliminación de duplicados. En este caso, la eliminación se llevó a cabo con un programa diferente al usado en el proceso anterior. El programa —nombrado `slayer.e`—, llevó a cabo la eliminación de duplicados a partir de los datos almacenados en el archivo `sorts.lis`.

Este nuevo programa conservó sólo aquel duplicado con el OSP más pequeño, independientemente de su FSP; los demás duplicados fueron eliminados. Los resultados obtenidos en este segundo proceso de reoptimización, se resumen en la Tabla 5.2.1.

Tabla 5.2.1. Número de mínimos observados en agregados de argón desde 6 hasta 14 miembros, a diferentes valores del intervalo de interacción del potencial de Morse. Los valores entre paréntesis corresponden al valor mínimo y máximo de energía (en unidades reducidas) obtenidos en la reoptimización de los mínimos LJ para cada sistema. Para el agregado de 14 átomos, el archivo original (LJ) contenía 4123 mínimos.

Cluster	ρ_0									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
06	1 (-14.71)	1 (-14.13)	1 (-13.54)	1 (-13.07)	2 (-12.72 -12.24)	2 (-12.48 -12.12)	2 (-12.32 -12.06)	2 (-12.21 -12.03)	2 (-12.14 -12.01)	1 (-12.00)
	1 (-20.32)	2 (-18.82 -18.67)	2 (-17.55 -17.27)	4 (-16.81 -15.83)	4 (-16.41 -15.42)	4 (-16.20 -15.21)	4 (-16.09 -15.11)	4 (-16.02 -15.05)	4 (-15.98 -15.03)	4 (-15.95 -15.01)
08	1 (-26.89)	1 (-24.28)	2 (-22.04 -21.10)	4 (-20.67 -19.53)	8 (-19.72 -18.60)	8 (-19.32 -18.30)	8 (-19.15 -18.15)	8 (-19.05 -18.08)	8 (-18.99 -18.04)	8 (-18.96 -18.02)
	2 (-34.32 -34.07)	2 (-30.30 -29.73)	6 (-26.77 -25.06)	11 (-24.80 -23.20)	17 (-23.89 -21.79)	18 (-23.41 -21.39)	21 (-23.16 -21.20)	21 (-23.01 -21.10)	21 (-22.91 -20.91)	21 (-22.85 -20.57)
10	2 (-42.59 -42.44)	3 (-36.81 -36.60)	12 (-31.88 -29.13)	24 (-29.39 -26.66)	47 (-28.13 -24.97)	59 (-27.47 -24.23)	64 (-27.10 -23.70)	64 (-26.89 -23.33)	64 (-26.71 -23.03)	62 (-26.58 -22.76)
	2 (-51.66 -51.66)	1 (-44.29)	9 (-37.93 -35.03)	51 (-34.08 -30.71)	118 (-32.40 -28.16)	162 (-31.52 -27.31)	167 (-31.01 -26.74)	166 (-30.69 -29.35)	159 (-30.46 -26.04)	156 (-30.26 -25.77)
12	2 (-61.75 -61.67)	1 (-51.97)	8 (-44.09 -39.11)	77 (-39.83 -34.54)	293 (-37.61 -31.35)	465 (-36.40 -30.41)	506 (-35.65 -27.80)	498 (-35.14 -29.38)	480 (-34.73 -29.06)	464 (-34.36 -28.77)
	2 (-72.71 -72.43)	1 (-60.99)	8 (-51.73 -44.32)	153 (-46.63 -38.57)	728 (-43.94 -34.57)	1298 (-42.43 -33.59)	1413 (-41.49 -32.85)	1457 (-40.80 -32.42)	1411 (-40.21 -32.08)	1372 (-39.66 -31.78)
14	2 (-84.36 -84.13)	1 (-69.02)	9 (-56.75 -49.41)	286 (-50.74 -42.07)	1773 (-41.31 -37.76)	3511 (-45.61 -36.67)	4008 (-44.58 -35.92)	3987 (-43.84 -35.74)	3884 (-43.24 -35.04)	3745 (-42.56 -34.79)

Puede observarse que los resultados obtenidos en esta reoptimización son muy similares, pero no iguales a los obtenidos en el proceso anterior. El número de mínimos obtenidos parece confirmar que las SEP de Morse y Lennard-Jones se vuelven más diferentes a medida que el valor del intervalo del potencial se aleja de los valores de 6-7. Sin embargo, para los sistemas de 6 a 10 átomos, el número de mínimos no cambia de manera sustancial a valores grandes de ρ_0 con respecto a los obtenidos con el potencial de LJ. El número de mínimos obtenidos para muchos de los sistemas estudiados es diferente al obtenido en el primer proceso de optimización —sección 5.1—, a pesar de que se partió de las mismas estructuras. Esto al parecer se debió a que el proceso de optimización en los dos casos no fue exactamente el mismo.

Por otra parte, algunos mínimos tienen un *volumen conformacional* muy pequeño; el volumen conformacional se define como la región de la SEP que contiene a todas las geometrías que se optimizan al mismo mínimo [5]. Para estos mínimos, cambios relativamente pequeños en la geometría pueden hacer que se sobrepase al volumen conformacional de otro mínimo. Es muy posible que esto suceda al cambiar ligeramente las condiciones de optimización, sobre todo en las etapas iniciales en las que los cambios a la geometría son mayores.

Los resultados arrojados por los procesos, tanto en esta parte del trabajo como en la anterior, proporcionan una idea más general de las diferencias entre las SEP de LJ y Morse, a diferentes valores del intervalo de interacción. Sin embargo, las conclusiones que pudieran hacerse en este momento con respecto a las diferencias entre los potenciales no serían del todo precisas. Esto se debe a que se ha partido de un número limitado de estructuras de LJ, y existe la posibilidad que a valores mayores del intervalo de interacción, el número real de mínimos en las SEP correspondientes sea aún más grande que lo indicado en estos dos procesos anteriores.

5.3. Exploración preliminar de la SEP con el potencial de Morse.

El objetivo principal de esta búsqueda preliminar fue observar el comportamiento del proceso de la búsqueda estocástica, utilizando el potencial de Morse para la obtención de mínimos de agregados de argón de 6 a 11 miembros. Dado que no se conocen referencias hasta este momento, en donde dicho método haya sido utilizado para explorar superficies de energía potencial de agregados de gases nobles con el potencial de Morse, el primer paso para llevar a cabo el proceso eficientemente, fue el determinar los parámetros que la búsqueda estocástica requiere al ser aplicado bajo estos sistemas.

Otra cuestión que se tomó en cuenta, fue la elección de las estructuras utilizadas para iniciar la búsqueda de mínimos para cada uno de los sistemas. Dichas estructuras se presentan en la figura 5.3.1, y corresponden a mínimos obtenidos en la exploración de SEP de estos agregados utilizando el potencial de Lennard-Jones [50].

Si bien la elección de la estructura usada como punto de partida para el proceso de búsqueda estocástica puede tener un efecto en los resultados del proceso, se ha tomado como suposición, el que no existe una dependencia directa y concluyente entre la cantidad final de

mínimos encontrados del sistema en cuestión y la configuración elegida como estructura de arranque.

Luego entonces, se eligió a un mínimo con energía mayor al promedio para iniciar la búsqueda de mínimos.

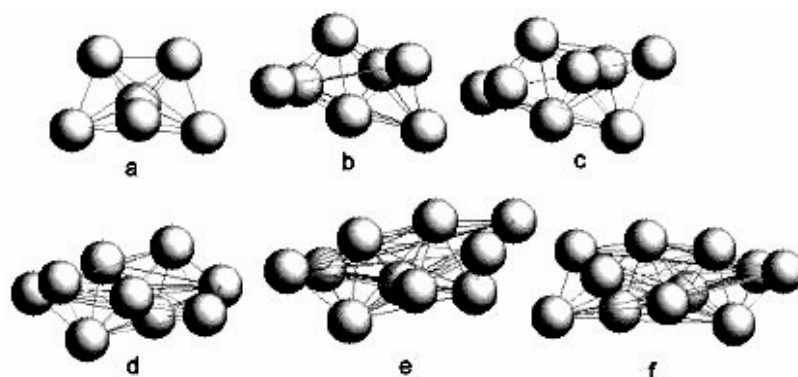


Figura 5.3.1. Estructuras de arranque, presentando enlaces falsos, para la caracterización de mínimos con el método de búsqueda estocástica de M. Saunders en agregados de (a)-seis, (b)-siete, (c)-ocho, (d)-nueve, (e)-diez y (f)-once miembros. Estas estructuras, obtenidas con el potencial de Lennard-Jones, no corresponden necesariamente al mínimo global.

La metodología para llevar a cabo la búsqueda estocástica se resume en los siguientes puntos:

1. De los archivos que contienen la colección de mínimos obtenidos en la exploración de SEP utilizando el potencial de Lennard Jones, se escogió una estructura y se extrajo del archivo utilizando el programa `select3.f`. Este programa extrae la matriz de coordenadas cartesianas del archivo con la estructura escogida en un formato adecuado para iniciar la búsqueda estocástica. La geometría escogida es entonces guardada en el archivo `ARGON.INI`. Esto se llevó a cabo para cada uno de los sistemas analizados en esta etapa. Como se mencionó anteriormente, se escogieron mínimos de alta energía.
2. Se editó el archivo `ARGON.INI` con el propósito de encabezar a la matriz de coordenadas, con los parámetros necesarios para el proceso de búsqueda de mínimos.
Los valores de los parámetros fueron los siguientes:
 - a. `NPUSH=100`. Número de *kicks* que se llevan a cabo en una sola corrida del programa `st4i.e`. El número total de *kicks* será el producto del valor de este parámetro, multiplicado

por el número de ciclos que el script `stochs` lleva a cabo —que son 10 veces—, y por el número de ciclos que el script `masters` ejecuta, en este caso 3 (3030 kicks en total).

- b. `PUSHORIG=1.6`. Es el valor de máximo del *kick*; originalmente en angstroms, aunque al utilizar el potencial de Morse en su forma reducida, las unidades de distancia resultantes son unidades reducidas, es decir, múltiplos de la distancia de equilibrio.
 - c. `WINDOW=8.0`. Diferencia máxima permitida entre las estructuras de mayor y menor energía generadas para una sola ejecución del programa `st4i.e`. Cualquier estructura que se encontrara fuera de este intervalo sería rechazada. Las unidades de energía son unidades reducidas, múltiplos de la energía de disociación para el sistema bajo estudio.
 - d. `HWIDTH=0.21`. Número que controla la distribución estadística (hasta cierto punto), de los valores de los kicks que se aplican a los átomos del agregado.
 - e. `SST=0.001`. Criterio para la terminación del proceso de optimización, definido como la magnitud máxima (en este caso en unidades reducidas de longitud) de un cambio geométrico que produce una disminución de la energía del sistema.
 - f. `RHO=1 a 10`. Valor del intervalo de interacción - ρ_0 - del potencial de Morse. Para cada uno de los agregados se manejó un intervalo de 1 a 10, llevándose a cabo un total de 60 búsquedas estocásticas.
3. Ejecución del programa `masters` para cada sistema. En esta búsqueda preliminar el número de *kicks* se estableció en un número pequeño —3030 en todos los casos—, en comparación con otras cantidades de *kicks* mucho mayores para búsquedas más rigurosas que se llevaron a cabo posteriormente.

5.4. Resultados de la primera exploración con el potencial de Morse.

En la Tabla 5.4.1 se muestra el número de mínimos caracterizados utilizando el método de búsqueda estocástica combinado con el potencial de Morse, para cada uno de los sistemas bajo estudio. Inicialmente puede observarse, que aún cuando el número de *kicks* llevados a cabo no fue rigurosamente grande, el número de mínimos obtenido fue en muchos casos mayor

al obtenido en el proceso de optimización de estructuras Lennard-Jones utilizando el potencial de Morse— sección 5.2—. Este incremento es más notorio en los casos en que el valor del intervalo de interacción es mayor.

Tabla 5.4.1. Número de mínimos caracterizados —en negritas— en el primer proceso de búsqueda estocástica, para agregados de argón desde 6 hasta 11 miembros, a diferentes valores del intervalo de interacción del potencial de Morse. Los valores entre paréntesis corresponden a los valores de energía para los mínimos de mayor y menor estabilidad obtenidos para cada sistema.

Agregado	ρ_0									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
06	1 (-14.7)	1 (-14.13)	1 (-14.13)	1 (-13.07)	2 (-12.72 -12.24)	2 (-12.48 -12.12)	2 (-12.32 -12.06)	2 (-12.21 -12.03)	2 (-12.13 -12.01)	2 (-12.09 -12.00)
	1 (-20.3)	2 (-18.82 -18.67)	2 (-17.55 -17.27)	4 (-16.81 -15.83)	4 (-16.41 -15.42)	4 (-16.20 -15.21)	4 (-16.09 -15.11)	4 (-16.02 -15.05)	4 (-15.98 -15.03)	4 (-15.95 -15.01)
08	1 (-26.9)	1 (-24.28)	3 (-22.04 -21.10)	5 (-20.61 -19.53)	8 (-19.72 -18.60)	8 (-19.32 -18.30)	10 (-19.15 -18.15)	10 (-19.05 -15.05)	10 (-18.99 -15.03)	9 (-18.96 -15.01)
	2 (-34.32 -34.07)	2 (-30.30 -29.73)	6 (-26.77 -25.06)	11 (-24.80 -23.20)	17 (-23.89 -21.79)	16 (-23.41 -21.39)	25 (-23.26 -21.20)	22 (-23.01 -21.10)	24 (-22.91 -21.05)	23 (-22.85 -21.02)
10	2 (-42.59 -42.44)	3 (-36.81 -36.60)	11 (-31.88 -30.05)	24 (-29.39 -27.33)	43 (-28.13 -24.97)	50 (-27.47 -24.23)	65 (-27.10 -24.24)	74 (-26.87 -23.26)	73 (-26.71 -23.94)	76 (-26.58 -23.08)
	2 (-51.66 -51.66)	1 (-44.29)	9 (-37.93 -35.03)	45 (-34.08 -30.71)	103 (-32.40 -28.16)	134 (-31.52 -27.31)	167 (-31.01 -27.29)	188 (-30.69 -26.36)	184 (-30.46 -26.15)	189 (-30.26 -26.08)

Sin embargo, aún no se observa uniformidad en el incremento en el número de mínimos con respecto al valor de ρ_0 . El número de mínimos observados parece aumentar al aumentar el valor de ρ_0 en el intervalo de 2 a 8 —salvo algunas excepciones, por ejemplo 9 mínimos con $\rho_0 = 10$ vs. 10 mínimos con $\rho_0 = 9$ en el agregado de 9 miembros—. Sin embargo, para agregados con un número de átomos igual o mayor a 8 —es decir, para 8, 9, 10 y 11—, la situación no es clara. Por ejemplo, cuando ρ_0 asume el valor unitario en el agregado de 11 miembros, se obtiene un mínimo extra y más estable que en el caso de ρ_0 con valor de 2.

Para este tipo de irregularidades no fue posible una explicación de manera inequívoca. Probablemente dichas irregularidades puedan deberse a que el número de *kicks* no fue suficiente para algunos valores de ρ_0 como para poder encontrar un mayor número de mínimos que en el valor anterior. Esto arroja, una vez más, indicios de que las SEP se vuelven más y más complejas a medida que se incrementa el valor del intervalo de interacción.

5.5. Segunda exploración de la SEP de agregados de gases nobles con el potencial de Morse.

El objetivo principal de este segundo proceso fue el de extender la búsqueda de mínimos en forma exhaustiva, incrementando el número de kicks, de acuerdo al tamaño del agregado, del valor del intervalo de interacción y a la aparición de nuevos mínimos locales en un momento dado.

Las estructuras de arranque fueron las mismas estructuras de Lennard-Jones de alta energía, que se utilizaron en el primer proceso de búsqueda —apartado 5.3—, con la diferencia que en este proceso se incluyó al agregado de argón de 12 miembros. La geometría inicial utilizada para este agregado se muestra en la Figura 5.5.1. Con esta inclusión, se llevaron a cabo búsquedas estocásticas de los mínimos para 70 sistemas.

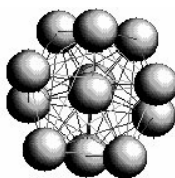


Figura 5.5.1. Representación con enlaces falsos de la “estructura LJ” del agregado de 12 miembros utilizada en el proceso de búsqueda estocástica con el potencial de Morse.

La metodología fue la misma que el proceso anterior, y los cambios en los valores declarados para los parámetros necesarios para la búsqueda —en el archivo `ARGON.INI`— fueron mínimos: El grado de alteración —referido como `PUSHORIG`— fue disminuído de 1.6 a 1.5, para reducir el número posible de estructuras fragmentadas generadas. Además, la “ventana” energética —referida como `window`— se incrementó de 8.0 a 15.0 unidades de energía reducida, para tratar de conservar el mayor número posible de mínimos.

Al ejecutar el programa `masters`, el número de *kicks* totales para cada uno de los sistemas, no se definió de manera absoluta. Para cada agregado y para cada valor de ρ_0 se continuaría el proceso de búsqueda mientras se siguieran registrando nuevos mínimos, hasta llegar al punto de no observar nuevas caracterizaciones. Con esto, se intentó llevar a cabo la exploración más completa posible de la SEP de cada sistema, dentro de las posibilidades de tiempo disponibles. Independientemente de este criterio, se manejó un número mínimo de *kicks*

a llevarse a cabo, dependiendo del tamaño del agregado. Estos valores se indican en la Tabla 5.5.1.

Tabla 5.5.1. Número mínimo de *kicks* llevados a cabo en la primera búsqueda de mínimos locales con agregados de argón de 6 a 12 miembros.

Agregado	Número de <i>kicks</i>
06	90000
07	90000
08	90000
09	90000
10	480000
11	600000
12	1600000

5.6. Resultados de la segunda exploración.

Como se mencionó anteriormente, la diferencia entre este proceso y el anterior —apartado 5.5—, difieren en un solo aspecto: La intensidad de búsqueda, expresada en el número de *kicks* realizados. Luego entonces, en esta ocasión se incrementó considerablemente la búsqueda con la finalidad de obtener el mayor conocimiento posible de la topología de la SEP para estos sistemas agregados. Sin embargo, como se ha hecho mención anteriormente, este aumento al número de *kicks* realizados en este segundo proceso con respecto al anterior, no ha de garantizar la localización ni de todos los mínimos del sistema, ni del mínimo global. Por otra parte, los resultados obtenidos indican claramente que entre más exhaustiva sea la búsqueda, mayor será el número de mínimos encontrados.

Esto se puede observar al comparar el número de mínimos obtenidos en el primer proceso con un número pequeño de *kicks* —Tabla 5.4.1— contra los resultados obtenidos en este segundo proceso, con un número mayor de estos ciclos, como se presenta en la Tabla 5.6.1. La limitante de la búsqueda utilizando un número exhaustivo de *kicks* sigue siendo el tiempo CPU requerido en la optimización de todas las geometrías generadas. Aunque en gran medida este tiempo depende de las características y velocidad de procesamiento de la computadora en la cual se ejecuta la búsqueda, la mayor limitante será el tiempo de computadora disponible para continuar la búsqueda.

Con estos datos más completos se confirma las tendencias ya descrita en la sección 5.1. y que se mencionan nuevamente en las siguientes líneas. Dos características cuantitativas se pueden observar primeramente: Los valores pequeños de ρ_0 dan como resultado los registros de energías más bajas.

Tabla 5.6.1. Número de mínimos (en negritas) caracterizados en agregados de argón desde 6 hasta 12 miembros, a diferentes valores del intervalo de interacción del potencial de Morse. Los segundos números indican la cantidad de *kicks* realizados, mientras que los valores entre paréntesis corresponden a los valores de energía (unidades reducidas) de las estructuras mayor y menor estabilidad energética para cada sistema.

Agreg.	ρ_0									
	01	02	03	04	05	06	07	08	09	10
06	1 90030 (-14.7181)	1 90030 (-14.1335)	1 90030 (-13.5442)	1 90030 (-13.0711)	2 90030 (-12.726 -12.2471)	2 90030 (-12.4878 -12.1280)	2 90030 (-12.3252 -12.0668)	2 90030 (-12.2161 -12.0350)	2 90030 (-12.1433 -12.0184)	2 90030 (-12.0949 -12.0096)
	1 90030 (-20.3281)	2 90030 (-18.8267 -18.6758)	2 90030 (-17.5529 -17.2764)	4 90030 (-16.8142 -15.8363)	4 90030 (-16.4192 -15.4207)	4 90030 (-16.2075 -15.2157)	4 90030 (-16.0913 -15.1116)	4 90030 (-16.0249 -15.0581)	4 90030 (-15.9841 -15.0303)	4 90030 (-15.9565 -15.0158)
07	1 90030 (-26.8952 -26.8952)	1 90030 (-24.2885 -24.2885)	3 90030 (-22.0429 -21.1008)	5 90030 (-20.6164 -19.5311)	8 90030 (-19.7277 -18.6063)	8 90030 (-19.3274 -18.3060)	10 90030 (-19.1520 -18.1571)	10 120060 (-19.0557 -18.0813)	10 190080 (-18.9999 -18.0423)	10 220090 (-18.9646 -18.0221)
	2 600220 (-34.3213 -34.0759)	2 480160 (-30.3082 -29.7361)	6 480160 (-26.7784 -25.0678)	11 480160 (-24.8014 -23.2075)	17 480160 (-23.8902 -21.7917)	19 480160 (-23.4171 -21.3964)	27 886362 (-23.1606 -21.2026)	27 480160 (-23.0125 -21.1046)	27 480170 (-22.9184 -20.9171)	28 480160 (-22.8507 -20.0301)
08	2 475240 (-42.5930 -42.4451)	3 400200 (-36.8166 -36.6094)	12 420210 (-31.8886 -29.1351)	27 380190 (-29.3977 -26.6627)	47 480240 (-28.1364 -24.9798)	61 440220 (-27.4733 -24.2330)	86 820410 (-27.1014 -23.7072)	108 1280640 (-24.8721 -23.1429)	115 1760880 (-26.7119 -23.0361)	116 1320650 (-26.5838 -22.7657)
	2 510260 (-51.6608 -51.6605)	1 830415 (-44.2966)	9 740370 (-37.9308 -35.0679)	52 620310 (-34.0835 -30.7159)	123 600300 (-32.4056 -28.1673)	171 920460 (-31.5219 -27.3102)	266 900450 (-31.0172 -26.7462)	410 1200600 (-30.6951 -26.2793)	422 1060530 (-30.4602 -21.0424)	496 1700850 (-30.2652 -21.9565)
09	2 1680840 -61.7537 -61.6737)	2 4582290 (-51.9791 -50.9534)	8 1600800 (-44.0978 -39.1141)	82 1600800 (-39.8306 -34.4619)	297 1600800 (-37.6170 -31.3556)	509 2631315 (-36.4003 -30.4181)	975 1700850 (-35.6587 -29.3774)	1708 2401200 (-35.1420 -29.1923)	1952 2761380 (-34.7301 -24.0441)	2388 2001000 (-34.3668 -24.0229)
	2 1680840 -61.7537 -61.6737)	2 4582290 (-51.9791 -50.9534)	8 1600800 (-44.0978 -39.1141)	82 1600800 (-39.8306 -34.4619)	297 1600800 (-37.6170 -31.3556)	509 2631315 (-36.4003 -30.4181)	975 1700850 (-35.6587 -29.3774)	1708 2401200 (-35.1420 -29.1923)	1952 2761380 (-34.7301 -24.0441)	2388 2001000 (-34.3668 -24.0229)

Esto se puede atribuir a que el incremento en ρ_0 hace que el potencial sea más repulsivo a distancias cortas y que la interacción atractiva se pierda a distancias largas. Por otro lado, a valores bajos del mismo, por ejemplo, en el valor unitario de ρ_0 la interacción atractiva del agregado se extiende a una distancia mayor, y se minimiza la interacción repulsiva. Esta misma característica se puede notar en la curva para el potencial de Morse usando diferentes valores del intervalo de interacción —Figura 2.8.1—; en donde el área comprendida por la interacción de atracción es bastante amplia para valores pequeños de ρ_0 , pero disminuye drásticamente conforme se incrementa el valor de este parámetro.

La segunda característica recae en que el incremento en el tamaño del agregado disminuye la energía de dicho sistema. Como se comentó anteriormente, esto se debe a que el número de pares interacciones atractivas existentes aumenta al incrementarse el número de miembros del agregado, lo que produce una menor energía total del sistema.

Se puede pensar por lo tanto, en que la eficiente disposición espacial de cada uno de los miembros del agregado hace que se maximicen las interacciones de estabilización una vez optimizada la estructura, y que esto mismo logra minimizar la inestabilidad que se puede presentar en un sistema agregado al incrementar su número de miembros.

También es posible comparar el número de mínimos obtenido para cada uno de los sistemas, con los obtenidos en las búsquedas utilizando el potencial de Lennard-Jones —Tabla 5.1.1—. A valores mayores del intervalo de interacción, el número de mínimos aumenta de forma sustancial. En las Figuras 5.6.1 a 5.6.7 se muestran los mínimos de menor energía correspondientes a cada uno de los sistemas analizados, para un valor de $\rho_0 = 5$.

Esta última relación entre ρ_0 y los mínimos sobre la SEP, se puede explicar de la siguiente manera: A medida que el intervalo de interacción se extiende a una distancia mayor (valores de ρ_0 pequeños), la SEP se vuelve más simple, y consecuentemente el número de mínimos disminuye de manera apreciable. Por el contrario, cuando el intervalo de interacción se vuelve más restringido (valores de ρ_0 grandes), la SEP es mucho más compleja y el número de mínimos aumenta de manera sustancial.

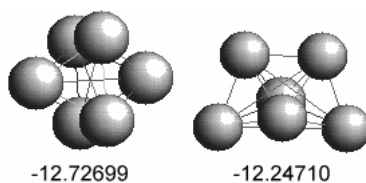


Figura 5.6.1. Modelos con enlaces falsos de los 2 mínimos obtenidos para el agregado de 6 átomos.

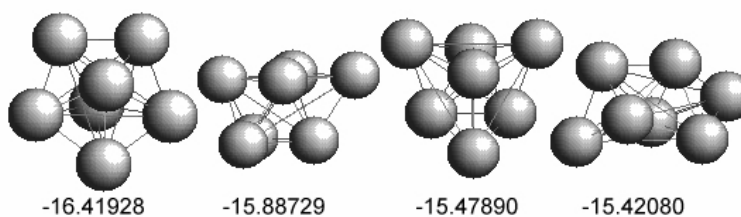


Figura 5.6.2. Modelos con enlaces falsos de los 4 mínimos obtenidos para el agregado de 7 átomos.

Este comportamiento es hasta cierto punto el esperado, pues a medida que la interacción atractiva de un átomo se extiende más allá de los átomos más cercanos (valores pequeños del intervalo de interacción, ver la Tabla 5.6.4), se deben preferir las configuraciones más “compactas” del agregado. Cuando la interacción atractiva se extiende a distancias cortas (ρ_0 pequeño), se hace sentir solamente sobre los átomos más cercanos, por lo que aumenta el número de configuraciones diferentes que pueden corresponder a mínimos.

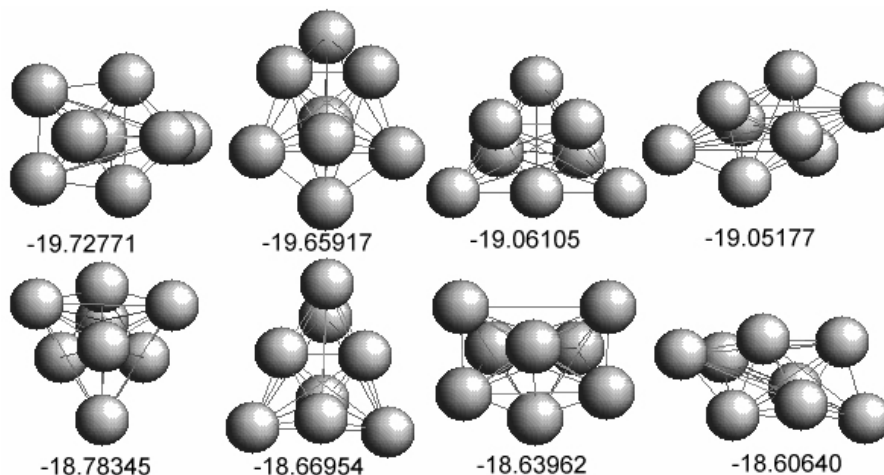


Figura 5.6.3. Modelos con enlaces falsos de los 8 mínimos obtenidos para el agregado de 8 átomos.

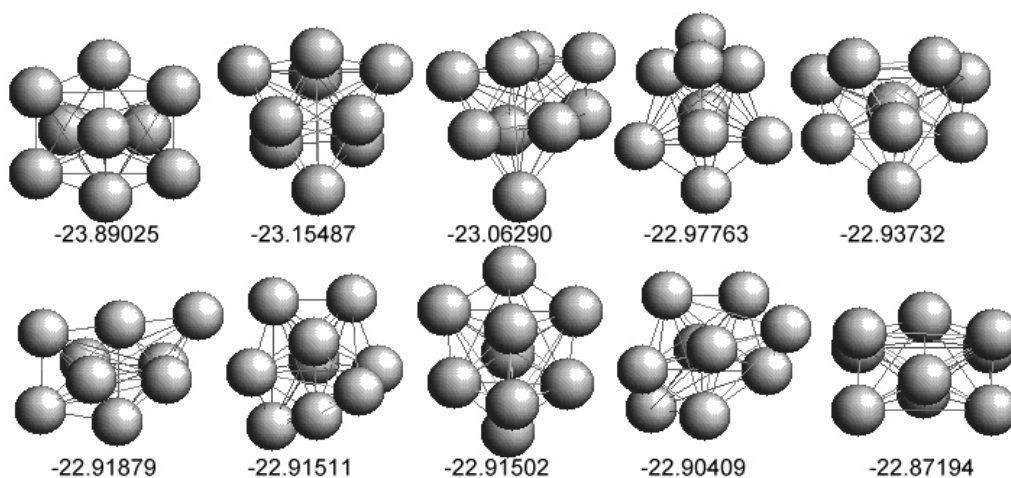


Figura 5.6.4. Modelos con enlaces falsos de los 10 mínimos obtenidos para el agregado de 9 átomos.

Como también puede observarse en la Tabla 5.6.1, en la mayoría de los casos se rebasó el número de *kicks* programado originalmente (mostrados en la Tabla 5.5.2). Si bien el aumento en el número de *kicks* realizados en este segundo proceso no garantiza la

caracterización del mínimo global de la superficie de energía potencial, ni de todos los mínimos posibles, ha comprobado ser un criterio útil para la búsqueda y localización de nuevos mínimos, así como el sugerir un probable mínimo global y la mayoría de sus estructuras más estables.

La extensión de la búsqueda se hizo por dos razones. Una de ellas fue que se observó una generación continua de algunos nuevos mínimos cada vez que se ejecutaba un ciclo del script `masters`, como en los casos de los agregados de 10 a 12 miembros, en valores de ρ_0 de 7 hasta 10. La otra razón fue la búsqueda exhaustiva de alguna posible estructura faltante, como lo fue en el caso del agregado de 11 miembros con $\rho_0 = 2$, donde se esperaba por lo menos la caracterización de una estructura más, según la tendencia general observada en una relación directamente proporcional entre el valor de ρ_0 y el número de mínimos.

Sin embargo, se obtuvo el mismo resultado poco comprendido, igual que en el primer proceso (ver en la Tabla 5.4.1 los mínimos obtenidos en el agregado de 11 miembros para $\rho_0 = 1$ y 2).

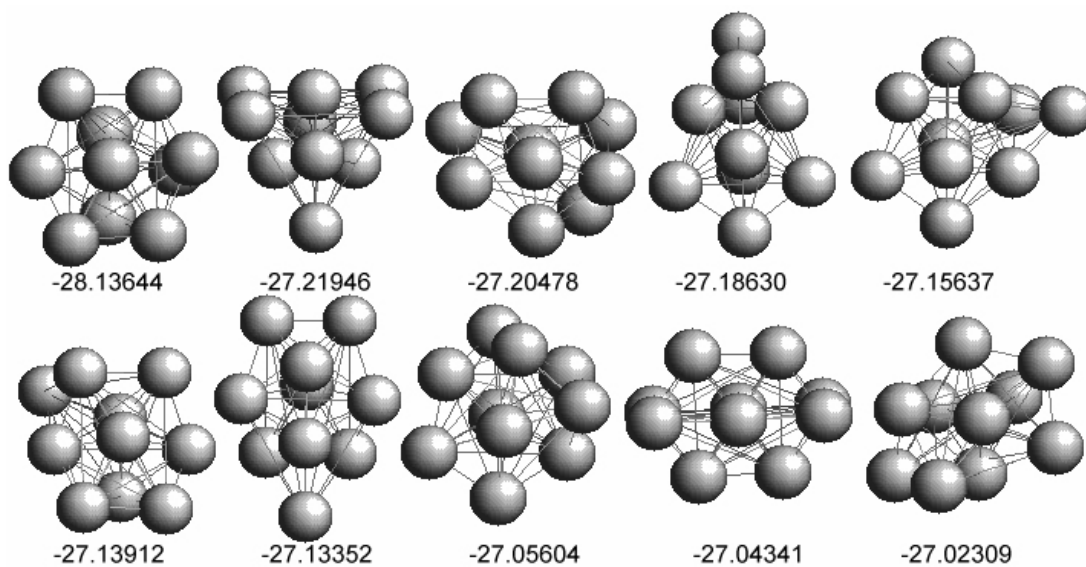


Figura 5.6.5. Modelos con enlaces falsos de los 10 mínimos obtenidos para el agregado de 10 átomos.

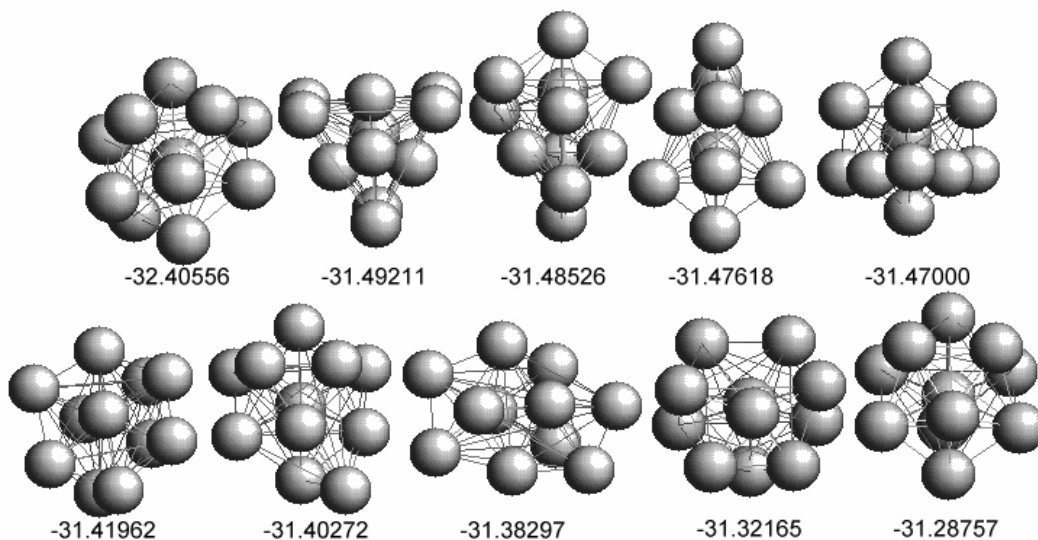


Figura 5.6.6. Modelos con enlaces falsos de los 10 mínimos obtenidos para el agregado de 11 átomos.

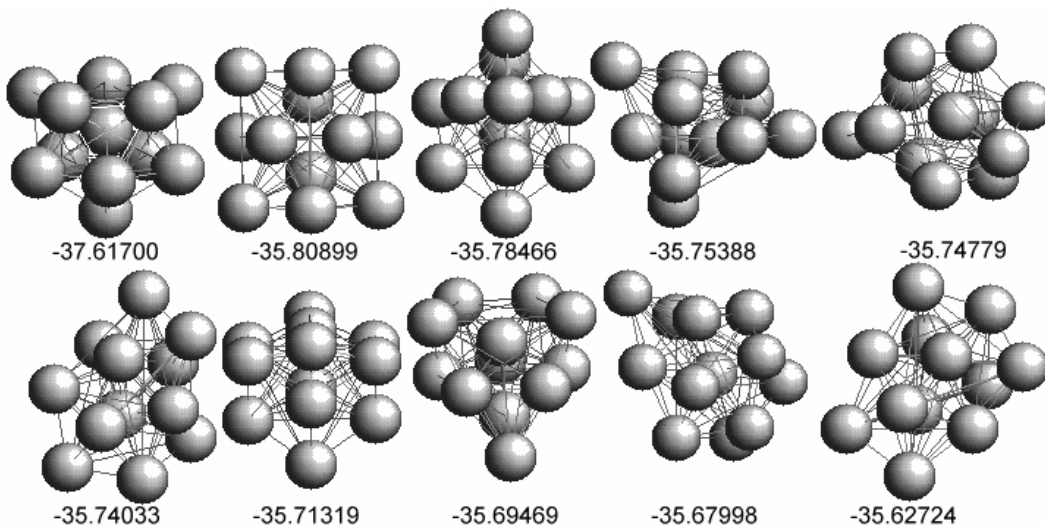


Figura 5.6.7. Modelos con enlaces falsos de los 10 mínimos obtenidos para el agregado de 12 átomos.

Por otra parte, el conjunto de resultados obtenidos puede analizarse desde otros puntos de vista. Por ejemplo, es posible analizar las preferencias geométricas de los agregados, y cómo éstas varían en función del intervalo de interacción.





También cabría la posibilidad de hacer un seguimiento de cuáles serían las geometrías que “permanecen” al reducir el valor de ρ_0 , y de las similitudes o diferencias entre estas estructuras (una analogía se consideró en el apartado 5.2). Sin embargo, un análisis completo de todos los datos obtenidos en este contexto, requeriría de una cantidad de tiempo relativamente grande, además del tiempo invertido en la obtención de todos los mínimos

descritos en la Tabla 5.6.1 y en los resultados obtenidos anteriormente. Por esta razón, se decidió que únicamente se llevaría a cabo un análisis de la distribución de mínimos en el intervalo de energías correspondientes a cada uno de los sistemas, aunque se analizaron otros aspectos para algunos casos representativos.

Luego entonces, es posible determinar la eficiencia del método seguido por comparación con resultados reportados previamente. Por ejemplo, Hoare y Pal determinaron la presencia de cuatro mínimos para el agregado de argón de 7 miembros utilizando el potencial de Lennard-Jones [48]. Estos mínimos los han identificado con los nombres de la bpirámide pentagonal (PBP), el octaedro+1 (COCT), el tetrahedro estelado incompleto (IST), y una estructura torcida (SKEW).

Las geometrías y energías del agregado de 7 miembros, estudiado en el trabajo mencionado, se muestran en la Tabla 5.6.2.

Tabla 5.6.2: Geometrías y energías (en unidades reducidas) de los 4 mínimos para Ar_7 obtenidos con el potencial de Lennard-Jones.

Estructura				
	PBP	COCT	IST	SKEW
E	-16.505	-15.935	-15.593	-15.533

Por otra parte, Berry y colaboradores han analizado detenidamente el comportamiento de la SEP de Morse de agregados de 6 y 7 átomos en función del valor del intervalo de interacción [45].

Para el caso del agregado de 7 átomos, encontraron que a valores de $\rho_0 \geq 4$, existen los mismos mínimos que fueron encontrados por Hoare y Pal con el potencial de LJ, pero que algunos de ellos desaparecen de la SEP a medida que el valor de ρ_0 se hace más pequeño.

Representando gráficamente los datos de energía de cada uno de los mínimos obtenidos en este proyecto, para cada valor de ρ_0 analizado, se obtendría la serie de curvas como las mostradas en la Figura 5.6.8. Esta gráfica es prácticamente idéntica a la reportada por Berry y colaboradores, y muestra aproximadamente a qué valores de ρ_0 desaparece cada uno de los tres mínimos de más alta energía. Asimismo, se puede observar que la geometría del mínimo global es la misma para todos los valores de ρ_0 estudiados.

El hecho de que los resultados que este trabajo ha arrojado para el caso del agregado de 7 átomos sean idénticos a los obtenidos por los trabajos de Berry, es un indicio de que la metodología aquí reportada ha sido adecuada. A partir de los datos obtenidos en el presente trabajo, se construyó una gráfica similar a la anterior, ahora para el agregado de 8 átomos — Figura 5.6.9—. En este caso, debido al mayor número de mínimos, no se hizo un análisis geométrico detallado de la estructura de cada uno de ellos.

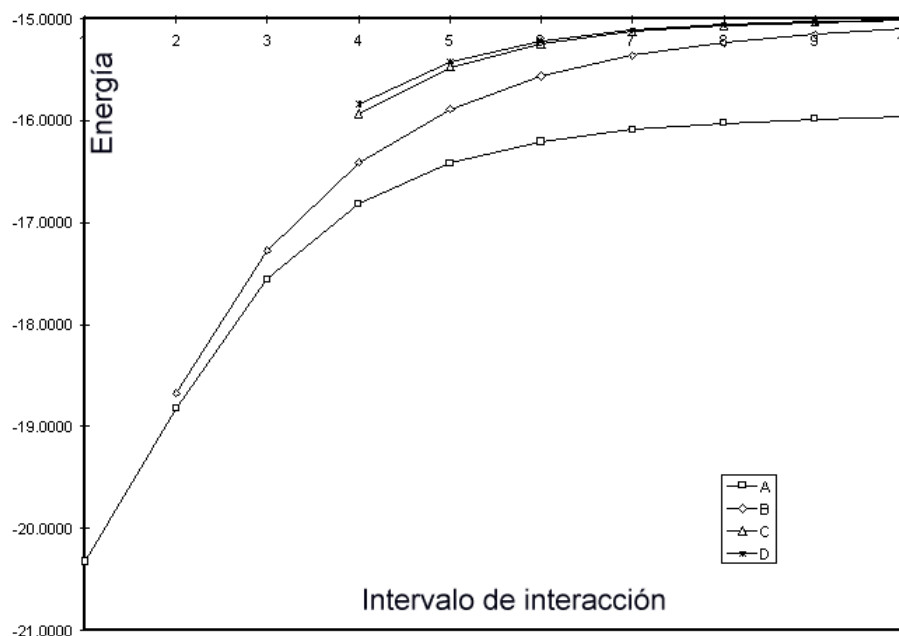


Figura 5.6.8. Energías (en unidades reducidas) de los mínimos correspondientes al agregado de 7 átomos en función de ρ_0 . A: PBP, B: COCT, C: IST, D: SKEW.

El seguimiento de cada uno de los 10 mínimos para $\rho_0 = 10$, a medida que se reducía el valor del intervalo, se llevó a cabo por medio de un programa adicional —nombrado *compara.e*— que lleva a cabo una comparación de estructuras utilizando un criterio similar al utilizado para eliminar duplicados, e indica cuales son las estructuras más parecidas entre sí. En el caso de posibles dudas que hayan surgido (por ejemplo, en el caso en que $\rho_0 = 1$), se utilizó un criterio visual para establecer el parecido, o la falta de éste, con otras estructuras.

La Figura 5.6.9 resulta ser un poco más compleja que la Figura 5.6.8. Esto se debe al mayor número de mínimos presentes en el agregado de ocho átomos, y al hecho de que algunos de ellos tienen energías muy similares, tanto que es difícil distinguir las curvas de algunos de ellos en la figura. Entre otros detalles interesantes que se pueden observar, se puede

mencionar el hecho de que los diez mínimos mantienen el mismo orden relativo de energía para valores de $\rho_0 \geq 7$.

La estructura correspondiente al mínimo global es la misma para $\rho_0 \geq 6$ (**C** en la Figura 5.6.9), sin embargo, cuando $2 \leq \rho_0 \leq 5$, el mínimo global es ahora la estructura que era la segunda en energía para valores mayores de ρ_0 —**B**—.

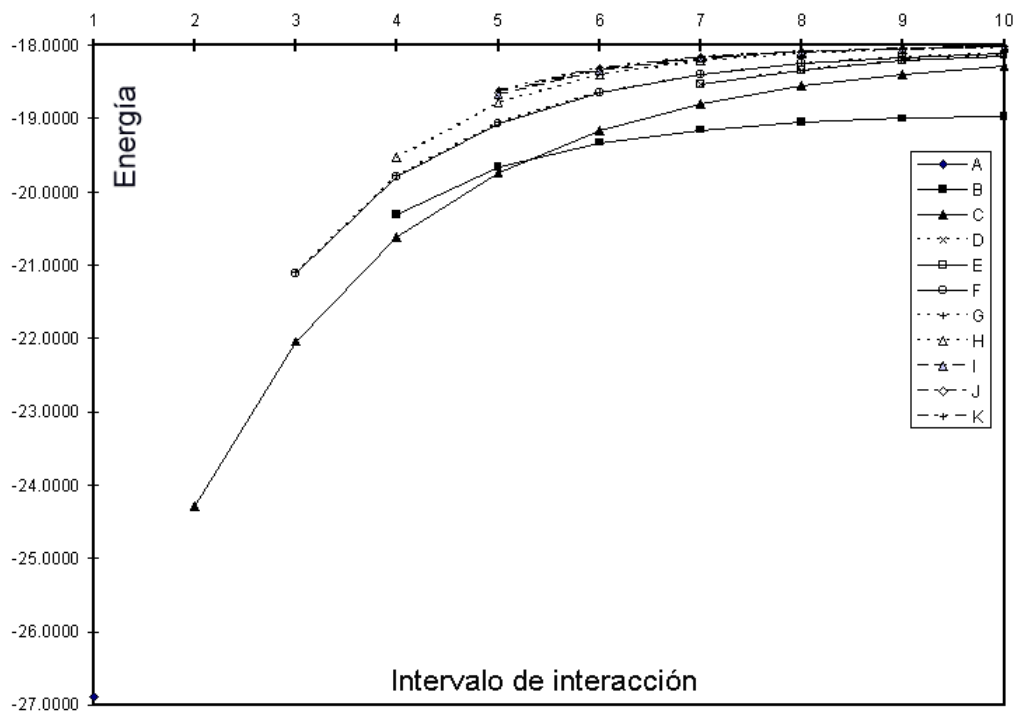


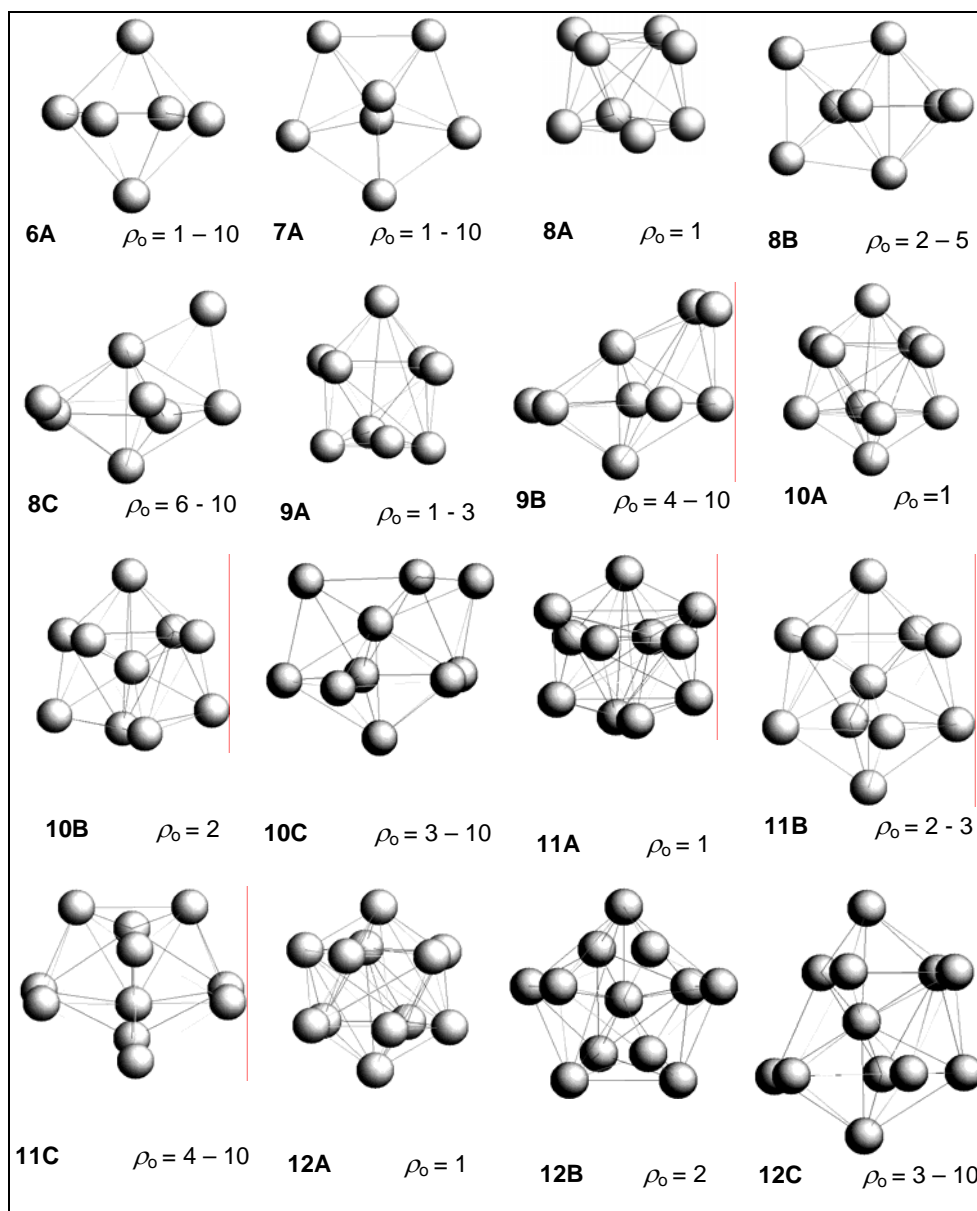
Figura 5.6.9. Energías (en unidades reducidas) de los mínimos correspondientes al agregado de ocho átomos en función de ρ_0 .

Además, el único mínimo encontrado para $\rho_0 = 1$ (es decir, **A**, sobre la coordenada de energía en la figura anterior) no tiene parecido con ninguno de los mínimos encontrados para valores mayores de ρ_0 .

Nuevamente Berry y colaboradores determinaron las estructuras de los mínimos globales para el potencial de Morse correspondientes a agregados de 2 a 25 átomos, en función del valor de ρ_0 [48]. Aunque los valores del intervalo de interacción utilizados por ellos fueron un poco diferentes (utilizaron valores de ρ_0 de 2 a 14) a los utilizados en este trabajo, las geometrías de los mínimos globales encontrados por el método de búsqueda estocástica corresponden exactamente a las descritas por ellos.

De la misma forma, estas geometrías también coinciden en sus valores de energía; al menos a los valores de ρ_0 que se tienen en común en los dos trabajos. La Tabla 5.6.3 muestra las estructuras de los mínimos globales encontrados en este trabajo, así como los valores de ρ_0 para los cuales dichas estructuras son mínimos. Las geometrías **8A**, **10A**, **11A**, y **12A** no fueron reportadas por Berry y colaboradores debido a que ellos no estudiaron valores del intervalo de interacción menores a 2.

Tabla 5.6.3. Geometrías correspondientes a los mínimos globales de los sistemas encontrados en el presente trabajo. Se indica el intervalo de interacción para el cual cada geometría corresponde a un mínimo. En cada caso, el número en negritas indica el número de átomos, mientras que la letra indica las diferentes geometrías para cada agregado.



Se ha reportado que en la minimización de agregados de átomos de gases nobles se observa la preferencia de una geometría icosaédrica [42, 44]. En el caso del potencial de Morse, se ha observado que la preferencia por la geometría icosaédrica depende del valor del intervalo de interacción [47, 49]. Aunque en nuestro caso no se contempló un análisis geométrico detallado, puede observarse en las estructuras mostradas en la tabla anterior, la tendencia a las geometrías icosaédricas a valores grandes de ρ_0 .

Los mínimos globales **7A**, **8C**, **9B**, **10C**, **11C** y **12C**, representan diferentes fases de la construcción de un icosaedro, conteniendo un átomo en la parte interna. El mínimo **12A** es un icosaedro a pesar de haberse encontrado para $\rho_0 = 1$.

Aunque los otros mínimos no tienen geometrías icosaédricas tan obvias, se pueden reconocer algunas similitudes entre algunos de ellos. Por ejemplo, los mínimos **8A**, **10A** y **11B** tiene la misma geometría base, y lo mismo puede decirse de los mínimos **9A**, **10B**, **11A** y **12B**, aunque también se observa que hay bastantes similitudes entre estos dos grupos de estructuras. Como se mencionó anteriormente, otro aspecto que se puede analizar es la distribución de mínimos en relación a su energía, para cada uno de los sistemas bajo estudio.

Como un ejemplo, se decidió analizar únicamente el agregado de doce átomos para cada uno de los valores del intervalo de interacción utilizados en este trabajo. Para llevar a cabo el análisis se utilizaron dos tipos de gráfica que se presentan a continuación —Figuras 5.6.10 a 5.6.17—, y que se complementan entre sí. En el primer tipo, se generaron gráficas con los números secuenciales de los mínimos en función de la energía correspondiente (en unidades reducidas).

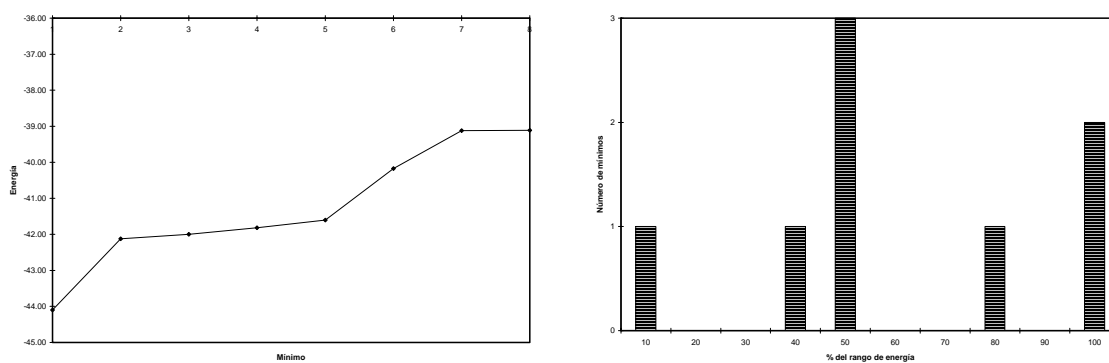


Figura 5.6.10. Distribución de mínimos para el agregado de 12 átomos cuando $\rho_0 = 3$. En la gráfica del lado izquierdo, cada punto corresponde a un mínimo.

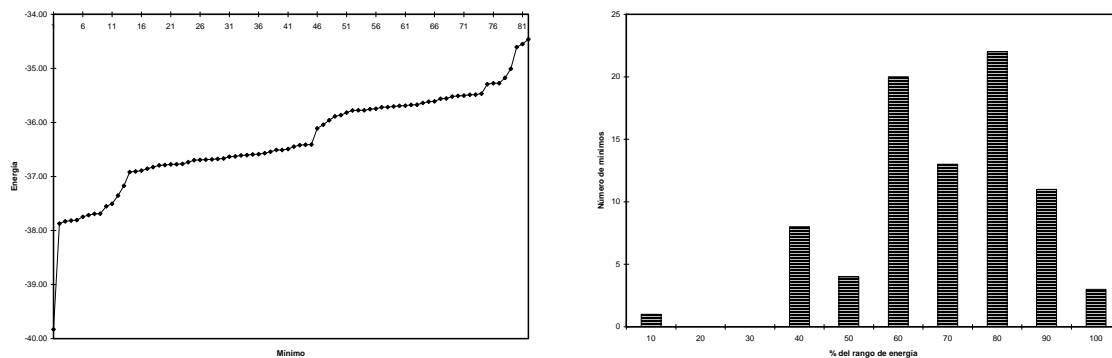


Figura 5.6.11. Distribución de mínimos para el agregado de 12 átomos cuando $\rho_0 = 4$.

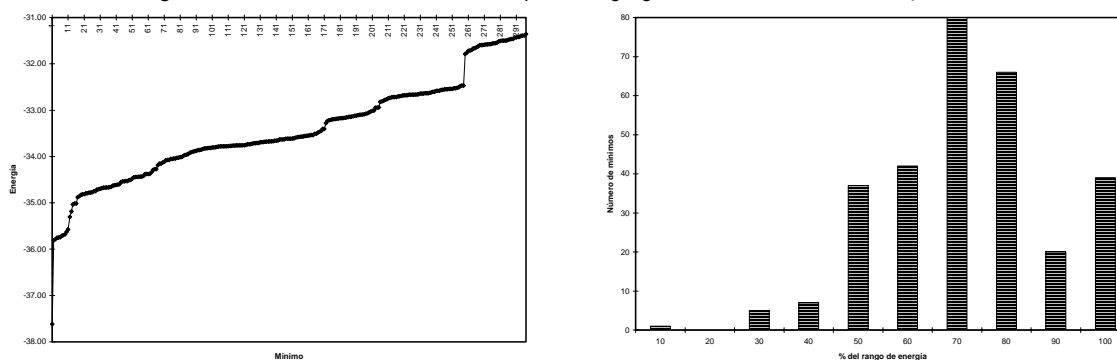


Figura 5.6.12. Distribución de mínimos para el agregado de 12 átomos cuando $\rho_0 = 5$.

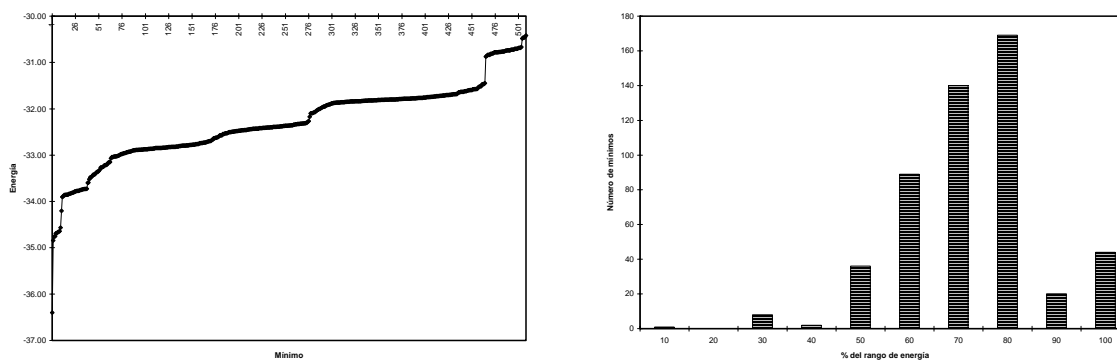


Figura 5.6.13. Distribución de mínimos para el agregado de 12 átomos cuando $\rho_0 = 6$.

Para el segundo tipo de gráficas se toman los valores de energía del mínimo global y del mínimo menos estable, y a ese intervalo de energía se le adjudica el porcentaje total. En el caso de las gráficas de este tipo, se utilizaron regiones correspondientes al 10%, representándose el número de mínimos encontrados en cada región. Los valores para ρ_0 de 1 y 2 no se consideraron porque únicamente se encontraron dos mínimos en cada caso.

En el análisis de estas figuras se pueden observar algunas características interesantes. En primer lugar, puede verse claramente que en todos los casos el número de estructuras en las

regiones de menor energía es muy pequeño. Se puede proponer que las geometrías más estables serán aquellas en las que se maximice el número de interacciones interatómicas atractivas y se minimice el número de interacciones repulsivas. Desde el punto de vista probabilístico, hay pocas geometrías que cumplan con estas características.

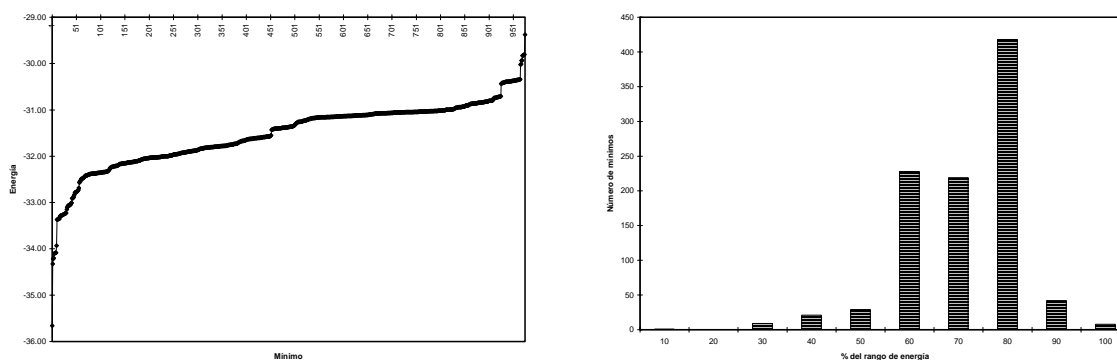


Figura 5.6.14. Distribución de mínimos para el agregado de 12 átomos cuando $\rho_0 = 7$.

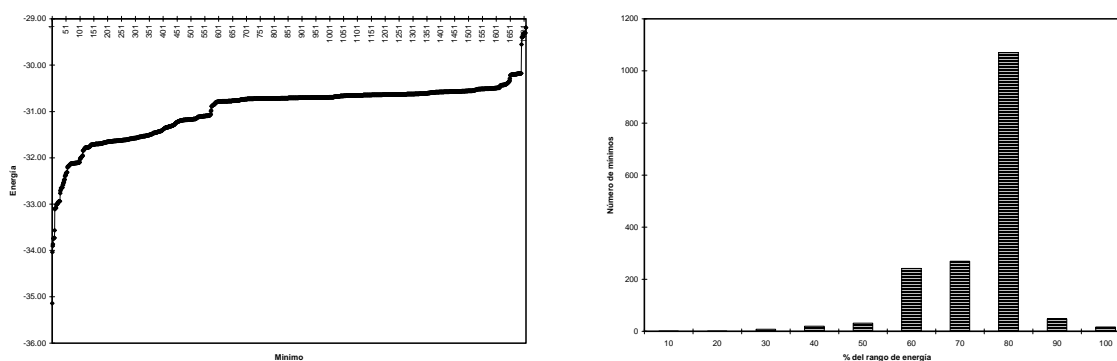


Figura 5.6.15. Distribución de mínimos para el agregado de 12 átomos cuando $\rho_0 = 8$.

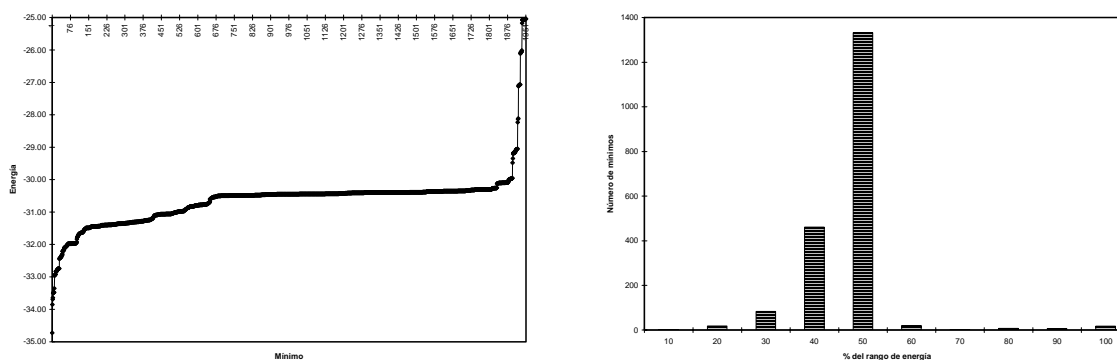


Figura 5.6.16. Distribución de mínimos para el agregado de 12 átomos cuando $\rho_0 = 9$.

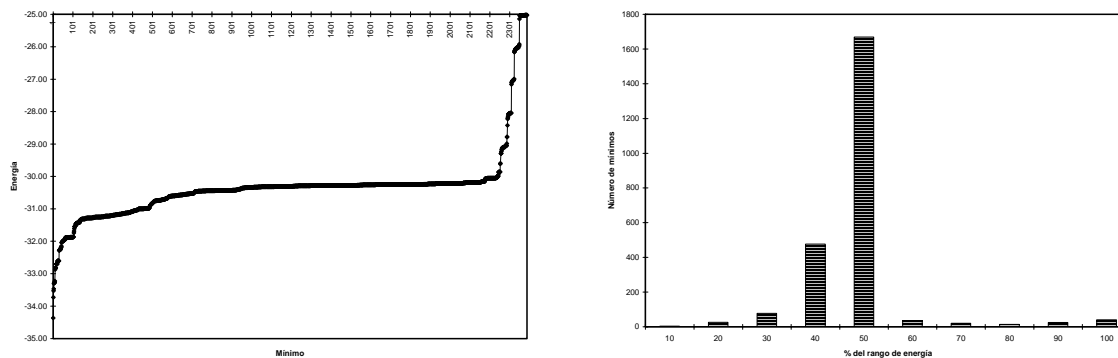


Figura 5.6.17. Distribución de mínimos para el agregado de 12 átomos cuando $\rho_0 = 10$.

A medida que el número de interacciones interatómicas se reduce, aumenta el número de posibilidades de la existencia de nuevos mínimos, y al mismo tiempo aumenta la energía. También es de esperarse que al disminuir de manera drástica el número de interacciones interatómicas las estructuras se vuelvan más inestables, por lo que el número de éstas debe reducirse a medida que la energía aumente. Por lo anterior, es muy posible que la distribución de mínimos, en función de la energía, se aproxime a una distribución normal, y que la región más poblada se encuentre en regiones intermedias del intervalo de energía de las estructuras encontradas.

En las figuras anteriores, puede nuevamente observarse que al menos para valores del intervalo de interacción comprendidos entre 3 y 8 se tiene una distribución de mínimos que se aproxima a la distribución normal, sin embargo, los mínimos se concentran en regiones de energía alta. Esto es una indicación de que las geometrías muy estables en cada caso son poco probables. Para valores del intervalo de interacción de 9 y 10, se observa un cambio en la distribución de mínimos. La mayor concentración se observa ahora a valores de energía intermedios, y empiezan a aparecer más mínimos a energías más altas. De hecho, se observa que el número de mínimos en estas regiones parece aumentar lentamente a medida que la energía se ve incrementada. Esto llamó la atención, y se decidió inspeccionar visualmente algunas de las geometrías en estas regiones del intervalo de energía. Esto se llevó a cabo utilizando el programa de distribución libre `rasmol` (este programa también se utilizó para crear las figuras que se incluyen en esta tesis).

Se observó que a estos valores del intervalo de interacción, empiezan a surgir estructuras que se pueden describir como “dos agregados pequeños”, que se encuentran unidos entre sí por interacciones presentes entre tres, dos o incluso un solo átomo. Esto reduce de manera importante el número total de interacciones interatómicas, y por lo tanto la energía aumenta de forma sustancial.

El hecho de que se observen este tipo estructuras se puede explicar de manera relativamente simple. A valores altos del intervalo de interacción, las fuerzas atractivas se extienden hasta una distancia relativamente pequeña de cada uno de los átomos. Por lo tanto, a una distancia relativamente grande no va a haber fuerzas atractivas que permitan la “compactación” del agregado. A valores más pequeños del intervalo de interacción, las fuerzas atractivas se extenderán a distancias mayores, y por lo tanto habrá una fuerza estabilizadora que permita la compactación del agregado. Estos factores también pueden explicar la razón de que en los agregados de 11 y 12 átomos a valores grandes del intervalo de interacción —mayor a 8— se optimizaran muchas estructuras correspondientes a agregados fragmentados, las cuales se tuvieron que eliminar de los archivos de manera manual. Es de esperarse que la presencia de estas estructuras con pocas interacciones interatómicas, se vuelva más importante en agregados mayores, a valores grandes del intervalo de interacción.

Un último aspecto que se puede analizar de las Figuras 5.6.10 a 5.6.17, sobre todo en las gráficas del lado izquierdo de la figura, es la aparición de “saltos” o escalones en las curvas obtenidas. Esto se puede interpretar como cambios bruscos en las geometrías de los mínimos. En otras palabras, puede decirse que la región comprendida entre dos escalones contiene mínimos muy relacionados entre si desde el punto de vista geométrico, presentando algunas variaciones ligeras a la misma geometría base. El salto de un escalón al siguiente, indica una nueva geometría base, lo cual implica un cambio más brusco en la energía de los mínimos.